

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

18.10.2004

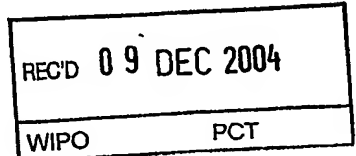
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日      2 0 0 4 年    9 月 3 0 日  
Date of Application:

出 願 番 号      特 願 2 0 0 4 - 2 8 6 3 4 9  
Application Number:  
[ST. 10/C]:      [ J P 2 0 0 4 - 2 8 6 3 4 9 ]

出      願      人      原子燃料工業株式会社  
Applicant(s):

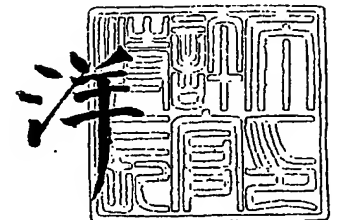


PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 4 年 1 1 月 2 6 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



BEST AVAILABLE COPY

出証番号    出証特 2 0 0 4 - 3 1 0 7 4 9 4

【書類名】 特許願  
【整理番号】 G030801  
【提出日】 平成16年 9月30日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 G21C 3/58  
【発明者】  
    【住所又は居所】 茨城県那珂郡東海村村松 3 1 3 5 - 4 1 原子燃料工業株式会社  
                        東海事業所内  
    【氏名】 高山 智生  
【特許出願人】  
    【識別番号】 000165697  
    【氏名又は名称】 原子燃料工業株式会社  
【代理人】  
    【識別番号】 100087594  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 福村 直樹  
【手数料の表示】  
    【予納台帳番号】 012069  
    【納付金額】 16,000円  
【提出物件の目録】  
    【物件名】 特許請求の範囲 1  
    【物件名】 明細書 1  
    【物件名】 図面 1  
    【物件名】 要約書 1  
    【包括委任状番号】 9807699

**【書類名】特許請求の範囲****【請求項 1】**

硝酸ウラニルを含有する滴下原液を滴下するノズルと、  
前記滴下原液を貯留する滴下原液貯留槽から送液される滴下原液の一定量を収容可能に、前記ノズルの内容積よりも大きな内容積を有し、収容した滴下原液を重力に従って前記ノズルに供給する滴下原液収容部と  
を備えて成ることを特徴とする滴下ノズル装置。

**【請求項 2】**

前記滴下原液収容部が、前記ノズルの水平断面積よりも大きい水平断面積を有して成る滴下原液収容部である前記請求項 1 に記載の滴下ノズル装置。

**【請求項 3】**

前記滴下原液収容部が、前記ノズルに直結されてなる前記請求項 1 に記載の滴下ノズル装置。

**【請求項 4】**

前記滴下原液収容部の内部形状は、逆円錐形状であることを特徴とする前記請求項 1 ～ 3 のいずれか 1 項に記載の滴下ノズル装置。

**【請求項 5】**

前記ノズルの先端部には、前記滴下原液の滴下方向に向かうエッジが形成されていることを特徴とする前記請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載の滴下ノズル装置。

**【請求項 6】**

前記ノズルは、その先端部の少なくとも前記滴下原液と接触する部分が撥水性材料で形成されてなることを特徴とする前記請求項 1 ～ 5 のいずれか 1 項に記載の滴下ノズル装置。

**【請求項 7】**

前記滴下原液収容部は、その内部表面が撥水性材料で形成されてなることを特徴とする前記請求項 1 ～ 6 のいずれか 1 項に記載の滴下ノズル装置。

**【請求項 8】**

アンモニア水溶液を貯留する貯留槽と、  
硝酸ウラニル含有の滴下原液を、前記貯留槽に貯留されたアンモニア水溶液に、滴下する前記請求項 1 ～ 7 のいずれか 1 項に記載の滴下ノズル装置と  
を備えて成ることを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置。

**【請求項 9】**

前記貯留槽中のアンモニア水溶液が上下に還流可能に、アンモニアガスを前記貯留槽内のアンモニア水溶液に供給するアンモニアガス供給手段を備えて成る前記請求項 8 に記載の重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置。

## 【書類名】明細書

【発明の名称】滴下ノズル装置、および重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置

## 【技術分野】

## 【0001】

この発明は、滴下ノズル装置および重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置に関し、さらに詳しくは、実質的に真球となった重ウラン酸アンモニウム粒子を形成するのに好適な滴下原液の液滴を滴下することのできる滴下ノズル装置および重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

高温ガス炉は、高温ガス炉用燃料を投入する炉心構造を、熱容量が大きくて高温健全性の良好な黒鉛で、構成している。この高温ガス炉においては、高温下でも化学反応が起こらなくて安全性が高いと評価されているヘリウムガス等の気体を冷却ガスとして用いているので、出口温度が高い場合でも冷却ガスを安全に取り出すことができる。したがって、炉心の温度が約900℃くらいにまで上昇したとしても、高温に加熱された前記冷却ガスは、発電はもちろん水素製造や化学プラント等、幅広い分野で、安全な熱利用として、使用されている。

## 【0003】

一方、この高温ガス炉に投入される高温ガス炉用燃料は、一般的に、燃料核と、この燃料核の周囲に被覆された被覆層とを備えて成る。燃料核は、例えば、二酸化ウランをセラミックス状に焼結してなる直径約350～650 $\mu$ mの微小粒子である。

## 【0004】

被覆層は、4層構造を有し、燃料核表面側より、第一層、第二層、第三層、および第四層とを備えて成る。被覆層を構成する被覆粒子の直径は、例えば、約500～1000 $\mu$ mである。

## 【0005】

以上のような高温ガス炉用燃料は、一般的に以下のような工程を経て製造される。まず、酸化ウランの粉末を硝酸に溶かして硝酸ウラニル溶液を調製する。次に、この硝酸ウラニル溶液と純水および増粘剤等とを混合し、攪拌して原液とする。調製された原液は、所定の温度に冷却されて粘度が調製された滴下原液とされた後、細径の滴下ノズルからこれをアンモニア水溶液に滴下される。

## 【0006】

このアンモニア水溶液に滴下された液滴には、アンモニア水溶液表面に達するまでの行程中に、アンモニアガスが吹きかけられる。このアンモニアガスによって液滴表面がゲル化して被膜が形成されるので、被膜を形成した液滴がアンモニア水溶液表面に落下する際の衝撃による変形が防止される。アンモニア水溶液中に投下された液滴中の硝酸ウラニルがアンモニアと十分に反応すると、重ウラン酸アンモニウム粒子（以下、「ADU粒子」と略す場合がある。）が形成される。

## 【0007】

この重ウラン酸アンモニウム粒子は、乾燥された後、大気中で焙焼され、三酸化ウラン粒子となる。さらに、三酸化ウラン粒子は、還元および焼結されることにより、高密度のセラミック状の二酸化ウラン粒子となる。この二酸化ウラン粒子を篩い分け、すなわち分級して、所定の粒子径を有する燃料核微粒子を得る（非特許文献1、2参照）。

## 【0008】

【非特許文献1】原子炉材料ハンドブック、p221～p247、昭和52年10月31日発行、日刊工業新聞社発行

【非特許文献2】原子力ハンドブック、p161～p169、平成7年12月20日発行、株式会社オーム社

## 【0009】

個々の粒子が真球である重ウラン酸アンモニウム粒子を大量かつ均一に製造するために

は、前記滴下ノズルの性能として、液滴容積が一定となるように液滴を落下させることが重要である。

【0010】

しかしながら、上記したような、液滴容積が一定となるように液滴を落下させることのできる滴下ノズルは、未だ見当たらない。そのため、直径分布が均一であり、真球性の良い二酸化ウラン燃料核を得ることのできる滴下ノズル装置及び重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置の開発が望まれている。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0011】

この発明は、このような要望を実現し、直径分布が均一であり、真球性の良い二酸化ウラン燃料核を得ることができる滴下ノズル装置、および重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置を提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0012】

前記課題を解決するための手段は、  
硝酸ウラニルを含有する滴下原液を滴下するノズルと、  
前記滴下原液を貯留する滴下原液貯留槽から送液される滴下原液の一定量を収容可能に、前記ノズルの内容積よりも大きな内容積を有し、収容した滴下原液を重力に従って前記ノズルに供給する滴下原液収容槽と  
を備えて成ることを特徴とする滴下ノズル装置である。

【0013】

この発明に係る滴下ノズル装置の好適な態様においては、前記滴下原液収容槽が、前記ノズルの水平断面積よりも大きい水平断面積を有して成る滴下原液収容槽であることが好ましい。

【0014】

この発明に係る滴下ノズル装置の好適な態様においては、前記滴下原液収容槽が、前記ノズルに直結されてなることが好ましい。

【0015】

この発明に係る滴下ノズル装置の好適な態様においては、前記滴下原液収容槽の内部形状は、逆円錐形状であることが好ましい。

【0016】

この発明に係る滴下ノズル装置の好適な態様においては、前記ノズルの先端部には、前記滴下原液の滴下方向に向かうエッジが形成されていることが好ましい。

【0017】

この発明に係る滴下ノズル装置の好適な態様においては、前記ノズルは、その先端部の少なくとも前記滴下原液と接触する部分が撥水性材料で形成されてなることが好ましい。

【0018】

この発明に係る滴下ノズル装置の好適な態様においては、前記滴下原液収容部は、その内部表面が撥水性材料で形成されてなることが好ましい。

【0019】

前記課題を解決するための別の手段は、アンモニア水溶液を貯留する貯留槽と、硝酸ウラニル含有の滴下原液を、前記貯留槽に貯留されたアンモニア水溶液に、滴下する前記滴下ノズル装置とを備えて成ることを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置である。

【0020】

前記重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置の好適な態様においては、前記貯留槽中のアンモニア水溶液が上限に還流可能に、アンモニアガスを前記貯留槽内のアンモニア水溶液に供給するアンモニアガス供給手段を備えて成ることが好ましい。

【発明の効果】

## 【0021】

(1) ノズルの先端部から液滴を滴下する場合、ノズルの先端部にまで滴下原液が流下し、前記先端部に接した状態のまま先端部外に滴下原液が流下し、なおも滴下原液が流下するにつれて先端部に付着する滴が膨満して滴の容積が増大し、膨満状態の液の重量がノズルの先端部に付着する力よりも勝ると、ノズルの先端部から滴下原液が液滴として落下する。その際、請求項1に係る発明によると、ノズルの先端部に付着しながら膨満していく滴下原液に、滴下原液収容槽に収容されているところの、ノズルの内容積よりも大きな内容積を占める一定量の滴下原液に起因する流体圧が、加わる。つまり、ノズルの先端部に付着する滴下原液に一定量の静水圧が加わる。その結果、連続して滴下していこうとする膨満状態の液滴に、常に同じ静水圧が加わるから、連続して落下する液滴は、同じ容積となる。ノズルから連続的に、同じ容積の液滴が落下するので、これらの液滴からはほぼ真球に形成された重ウラン酸アンモニウム粒子が形成され、しかも多数形成される重ウラン酸アンモニウム粒子はいずれも同様の真球度に形成されて均一になる。この発明においては、前記滴下原液収容部は、ノズルの先端部に付着する液滴等に一定の静水圧を印加する加圧手段の作用をなす。

(2) 請求項2に係る発明によると、前記(1)に記載の効果に加えて、滴下原液収容槽が前記ノズルの水平断面積よりも大きな水平断面積を有するので、ノズルの内容積よりも大きな内容積を有する滴下原液収容槽の大きさとして、滴下原液収容槽の高さを大きく取る必要がなくなる。

(3) 請求項3に係る発明によると、前記(1)又は(2)に記載の効果に加えて、滴下原液収容槽から配管を介してノズルに滴下原液を送液する場合に比べ、配管を使用することによる圧力損失を生じることなく、滴下原液収容槽からノズルに滴下原液を送液することができ、圧力損失を生じない分、ほぼ真球に形成された重ウラン酸アンモニウム粒子が形成され、しかも多数形成される重ウラン酸アンモニウム粒子はいずれも同様の真球度に形成されて均一になる。

(4) 請求項4に係る発明によると、この滴下ノズル装置の内部を洗浄する場合に、前記滴下原液収容槽の内部形状として形成された逆円錐形の内壁面を洗浄液が流下するので、滴下原液収容槽内に洗浄液が残留することがなくなる。

(5) 請求項5に係る発明によると、ノズルの先端部にエッジが形成されているので、ノズルの先端部と液滴とを円滑に分離することができる。

(6) 請求項6に係る発明によると、撥水性材料でノズルの先端部が形成されているので、ノズルから液滴が容易に分離することができる。

(7) 請求項7に係る発明によると、撥水性材料で滴下原液収容槽の内部表面を形成しているので、滴下原液収容槽の内面の洗浄を容易に行うことができる。たとえば、滴下原液収容槽の内部を洗浄した場合に、洗浄液の残渣が滴下原液収容槽の表面に残留することがない。

(8) 請求項8に係る発明によると、前記請求項1～7のいずれか1項に記載の構成を有する滴下ノズル装置を有しているので、真球に近い液滴を滴下ノズル装置から滴下することができることにより、ほぼ真球に形成された多数の重ウラン酸アンモニウム粒子を均一に製造することができる。

## 【発明を実施するための最良の形態】

## 【0022】

図1に、この発明の一例である滴下ノズル装置を含むところの、この発明の一例である重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置（以下においてADU粒子製造装置と略称することがある。）を示す。この発明に係るADU粒子製造装置は、図1に記載されたADU粒子製造装置に限られることはない。さらに、この図1は、滴下ノズル装置および重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置の設計図面ではなく、滴下ノズル装置および重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置の機能および構造等を説明するための図面である。

## 【0023】

## (1) ADU粒子製造装置

図 1 に示される A D U 粒子製造装置 1 は、硝酸ウラニルを含有する滴下原液から重ウラン酸アンモニウム粒子を製造することができる。図 1 に示されるように、この A D U 粒子製造装置 1 は、滴下ノズル装置 2、及び A D U 粒子形成装置 3 を有する。

【0024】

この発明の一例である滴下ノズル装置 2 は、滴下原液を液滴として滴下するように形成される。図 1 に示されるように、滴下原液を滴下するノズル 4 と、前記ノズル 4 の内径より大きい断面寸法を有するとともに、滴下原液を調製するとともにこれを貯蔵する滴下原液調製槽 5 からポンプ P を介して移送される滴下原液を収容する滴下原液収容槽 6 とを備えて成る。

【0025】

前記滴下原液調製槽 5 は、硝酸ウラニル含有の滴下原液を収容し、ポンプ P の駆動により一定量の滴下原液を滴下原液収容槽 6 に移送するようになっている。

【0026】

なお、前記滴下原液は、例えば、酸化ウランの粉末を硝酸に溶かした硝酸ウラニル溶液を調製し、この硝酸ウラニル溶液に純水、ポリビニルアルコール樹脂等の増粘剤等を添加し、攪拌して得られる。滴下原液における硝酸ウラニルの濃度及び滴下原液自体の粘度等は、従来から公知であり、通常の場合、滴下粒子の所望粒径に応じて滴下原液自体の粘度が適宜に決定される。滴下原液の粘度の一例は、10℃で 10～500 c P s である。

【0027】

滴下原液収容槽 6 は、一定量の滴下原液を収容するように形成される。したがって、滴下原液収容槽 6 内に一定の液面高さとなるように滴下原液が収容される。そのために、たとえば滴下原液収容槽 6 内の一定液面高さ以上に成るほどに滴下原液が供給される場合には、たとえば、一定液面高さを超える滴下原液がオーバーフローして排出される排出管（図示せず。）が、この滴下原液収容槽 6 に取り付けられている。

【0028】

滴下原液収容槽 6 の内部形状としては、図 2 に示されるように、水平断面が円形をなす略円筒形の内部形状、及び図 4 に示されるように、逆円錐形の内部形状を挙げることができる。滴下原液収容槽 6 の内部形状が逆円錐形であると、この滴下原液収容槽 6 の内部を洗浄する場合に、洗浄液の残留をなくすることができて好都合である。また、滴下原液収容槽 6 の内部形状を略円筒形にする場合、滴下原液収容槽 6 の製造が容易である。したがって、製造の容易性という観点から、多くの場合には、この滴下原液収容槽 6 の内部形状は円筒形に形成されている。もっとも、滴下ノズル装置 1 及びこの滴下ノズル装置 2 を組み込んでなる重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置 1 における設計事情によっては、この滴下原液収容槽 6 の内部形状は、他の形状たとえば、水平断面が方形又は長方形である角筒体形状、水平断面が半円形を成す筒体形状、水平断面が三角形をなす筒体形状等であっても良い。

【0029】

滴下原液収容槽 6 を構成する材料としては、滴下原液の成分と化学反応を起こさず、体積変化を起こさない材質であればよく、例えば、ガラス、ステンレス鋼、アルミニウム、アルミニウム合金、マグネシウム、マグネシウム合金、ジルコニウムまたはジルコニウム合金等を挙げることができる。

【0030】

前記滴下原液収容槽 6 の内部表面は、撥水性材料で形成されてなることも好ましい。ここで、滴下原液収容槽 6 全体が、撥水性材料で形成されていてもよいし、前記滴下原液と接触する内部表面に撥水性材料を塗布等して形成するようにしてもよい。

【0031】

撥水性材料としては、例えば、水との接触角が、90度以上である基材、または表面に低級アルキル基等を有する微粒子等が挙げられる。

【0032】

上記水との接触角が、90度以上である基材としては、例えば、ポリエチレン、ポリブ

ロピレン、フッ化黒鉛、含フッ素樹脂、オルガノポリシロキサン等が挙げられる。

#### 【0033】

上記含フッ素樹脂としては、例えばテトラフルオロエチレン、ヘキサフルオロプロピレン、パーフルオロビニルエーテル（パーフルオロメチルエーテル等）、パーフルオロアリルエーテル、パーフルオロプロピレン、ビニリデンフルオライド等のフッ素含有重合性モノマーの単独重合体（ポリテトラフルオロエチレン、ポリビニリデンフルオライド等）、それらの共重合体（ポリビニリデンフルオライドーポリテトラフルオロエチレンーパーフルオロプロピレン共重合体、ビニリデンフルオライドーヘキサフルオロプロピレンーテトラフルオロエチレン共重合体等）、その一部変性品（前記重合体のエチレン又はプロピレン変性品等）などが挙げられる。なお、この接触角の測定装置としては、例えば、接触角計（協和界面科学社製：接触角計CA-D型）等が挙げられる。

#### 【0034】

一方、上記表面に低級アルキル基等を有する微粒子としては、例えば表面にメチル基やその他アルキル基、又はフッ化アルキル基を有する無機又は有機の微粒子が挙げられ、特に表面にメチル基、エチル基等の低級アルキル基を有する疎水性シリカ微粒子が好適に使用される。

#### 【0035】

上記疎水性シリカ微粒子としては、例えばAEROSIL R972D（日本アエロジル社）、Nipsil SS-50及びNipsil SS-30S（日本シリカ工業社）等、一般に市販されているものが使用可能である。

#### 【0036】

円筒形の内部形状を有する滴下原液収容槽6のその大きさについては、後述する。

#### 【0037】

前記ノズル4は、その先端部から滴下原液を滴下可能に形成される。ノズル4の内部形状は通常円筒形であるが、場合によっては、他の形状たとえば、水平断面が方形又は長方形である角筒体形状、水平断面が半円形を成す筒体形状、水平断面が三角形をなす筒体形状等であっても良い。

#### 【0038】

このノズル4から滴下される液滴は、通常、その直径が0.2～2mmである球状である。なお、このノズル4の先端開口部で膨満しつつ球状に形成される滴下原液の滴を滴下球と称することがある。このように微小で、前記粘度を有する液滴を前記ノズル4の先端開口部から滴下するために、このノズル4が円筒管状の内部形状を有するときに、その好適な内径は、通常、0.2～2mmである。また、このノズル4は、通常、直管であるが、場合によっては曲管であってもよい。ただし、この発明においては、ノズル4の先端開口部から滴下される多数の液滴が圧力損失を受けた結果としてその直径が区々となってしまうことを防止しようとするのであるから、ノズル4における滴下原液の流通長さをあまり長くしないほうが好ましい、このような観点から、直管であるノズル4の軸線方向長さは、好適には0.1～1cmである。ノズル4の軸線方向長さが1cmを超えると加圧力により液滴をノズル4の先端から吐出させなければ成らなくなることがあるので、装置の複雑化を招くことがある。ノズル4の軸線方向長さが0.1cm未満であると、ノズル4の先端開口部から液滴の吐出が円滑に行われないことがある。

#### 【0039】

また、前記ノズル4は前記滴下原液収容槽6の底部に直結されていてもよく、また、ノズル4の後端と前記滴下原液収容槽6とを連絡管（図示せず。）で連結していてもよい。もっとも、滴下原液収容槽6からノズル4の先端開口部までの距離を短くしてできるだけ圧力損失を小さくするという観点からすると、ノズル4の後端部を前記滴下原液収容槽6に直結した状態であるのが、望ましい。ここで、直結というのは滴下原液収容槽6に形成された排出口にノズル4の後端開口部が位置していることを意味し、この意味で滴下原液収容槽6とノズル4とが直結している限り、滴下原液収容槽6とノズル4とが一体に形成されていてもよく、また別々に製造された滴下原液収容槽6とノズル4とを機械的に結合



することにより一体化されていても良い。

#### 【0040】

前記ノズル4を形成する材質としては、硝酸ウラニル含有の滴下原液により悪影響を受けない材質であればよく、たとえば、ガラス、ステンレス鋼、アルミニウム、アルミニウム合金、マグネシウム、マグネシウム合金、ジルコニウムまたはジルコニウム合金等を挙げることができる。

#### 【0041】

たとえば、図3に示されるように、前記ノズル4の先端部4Aには、エッジ4Bを形成しておくのが、好ましい。このエッジ4Bは、ノズル4の先端開口部に形成される滴下球7のエッジ4Bからの分離を促進する機能を有し、換言すると、滴下球7がノズル4の先端から分離する際の「キレ」を良好にする。エッジ4Bの分離促進機能についての合理的理由は、未だ解明にされていないが、推測として、滴下球7がノズル4の先端開口部に付着している場合に、先端開口部にエッジ4Bが形成されていることにより、滴下球7の付着面積を小さくすることができ、その結果、落下しようとする滴下球7を引き止めようとする力がエッジ4Bにより小さくなるものと、考えられる。なお、エッジ4Bの形状は、図3に示されるように、ノズル4の先端開口部に環状に、かつそのノズル4の外周面がノズル4の内周面に収斂するように縦断面が楔型に形成されるのが好適であるが、鋸歯状に形成されていても良い。

#### 【0042】

前記ノズル4の先端開口部における滴下球が形成される部分、たとえばエッジ4Bが形成されていないときにはノズル4の先端開口部、またはエッジ4Bが形成されているときにはそのエッジ4Bは、撥水性材料で形成されていることが好ましい。もっとも、ノズル4全体が、撥水性材料で形成されていてもよいし、前記滴下原液と接触する部分の表面に撥水性材料を塗布等して形成するようにしてもよい。

#### 【0043】

撥水性材料としては、前記滴下原液収容槽6において説明した撥水性材料と同様であるから、その詳細な説明を省略する。

#### 【0044】

請求項1に記載された構成を有する滴下原液収容槽及びノズルであればこの発明の目的を達成することができるが、上述したように滴下原液収容槽6及びノズル4を設計すると、一定の直径を有する滴下球をノズル4の先端開口部に形成することができ、ひいては均一な真球状の重ウラン酸アンモニウム粒子を均一に製造することができるという目的をよく達成することができる。

#### 【0045】

この発明におけるノズルにつき、一基の前記滴下原液収容槽6に一本のノズル4が結合されていてもよいし、一基の前記滴下原液収容槽6に複数のノズル4が結合されていてもよい。

#### 【0046】

このADU粒子形成装置3は、図1に示されるように、ADU粒子形成槽8と、内筒9と、第1アンモニアガス供給手段10と、第2アンモニアガス供給手段11とを有する。

#### 【0047】

前記ADU粒子形成槽8は、アンモニア水溶液を貯留する槽である。このADU粒子形成槽8において、アンモニア水溶液に含まれるアンモニアと前記滴下ノズル装置2から滴下された硝酸ウラニル含有の液滴に含まれる硝酸ウラニルとが反応して重ウラン酸アンモニウムの粒子が形成される。

#### 【0048】

前記ADU粒子形成槽8は、耐腐食性、特に、耐アルカリ性、耐熱性、耐圧性を有する材料で形成されていれば、特に制限は無く、前記材料としては、例えば、ステンレス鋼、アルミニウム、アルミニウム合金、マグネシウム、マグネシウム合金、ジルコニウムまたはジルコニウム合金等を挙げることができる。

## 【0049】

前記ADU粒子形成槽8は、例えば、円筒状に形成された円筒状本体と、その円筒状本体の下部に逆円錐状に形成された底部とを備える。このADU粒子形成槽8の円筒状本体の、たとえば中間位置にまでアンモニア水溶液が貯留される。この円筒状本体の周側面であって、アンモニア水溶液の液面よりも高い位置には、第1アンモニアガス供給手段10が取り付けられる。

## 【0050】

前記滴下ノズル装置2が一基の滴下原液収容槽6に一本のノズル4が結合されてなるときには、このADU粒子形成槽8は、その縦軸心と前記滴下ノズル装置2におけるノズル4の軸心とが一致するように、配置されることが望ましい。また、滴下ノズル装置2が複数の滴下原液収容槽6それぞれに一本のノズル4が結合されてなる構造であるときには、各ノズル4から滴下される液滴がADU粒子形成槽8の軸心中心部に落下するように、滴下原液収容槽6が配置されることが望ましい。

## 【0051】

この第1アンモニアガス供給手段10は、ADU粒子形成槽8内におけるアンモニア水溶液の液面上にアンモニアガス雰囲気を形成し、このアンモニアガス雰囲気により、滴下ノズル装置2から滴下される液滴の表面はゲル化される。この第1アンモニアガス供給手段10は、図示しないアンモニアガスタンクと、そのアンモニアガスタンクから供給されるアンモニアガスを、ADU粒子形成槽8における円筒状本体内に噴出させるアンモニアガスノズルとを備える。このアンモニアガスノズルの配設位置は、円筒状本体におけるアンモニア水溶液の液面よりも高い位置である。

## 【0052】

前記ADU粒子形成槽8の内部には、円筒状をした内筒9が配置される。この内筒9は、上部及び下部を開口する円筒体に形成される。この内筒9は、前記ADU粒子形成槽8の内部に、例えば、適宜の支持部材によって、アンモニア水溶液中に完全に沈められるように、設置される。

## 【0053】

前記ADU粒子形成槽8内における前記内筒9は、前記ADU粒子形成槽8の内壁および底面に接触しないように配置されていれば、特に、制限はなく、例えば、ADU粒子形成槽8の水平断面の中心と内筒9の水平断面の中心とが同軸となるように、配置するのがよい。

## 【0054】

前記内筒9が、このように配置されることにより、前記ガス噴出部12を介して供給されたアンモニアガスによって、内筒9の内側に存在するアンモニア水溶液は、上方へ流れ、また、内筒の外壁とADU粒子形成槽の内壁との間に存在するアンモニア水溶液は、下方へ流れる。つまり、前記内筒9を設けることにより、前記ADU粒子形成槽8中のアンモニア水溶液を強制的かつ効率的に上下に循環させることができる。

## 【0055】

このような循環流が形成されると、ADU粒子が、アンモニア水溶液中で流動状態になることにより、化学反応が不完全な状態のADU粒子が堆積することはなくなる。その結果、硝酸ウラニルとアンモニアとの化学反応が完全に進行し、しかも堆積による粒子形状の変形もないので、従来の装置で得られるADU粒子よりも、高品質で真球となったADU粒子を製造することができる。

## 【0056】

前記内筒9は、耐腐食性、特に、耐アルカリ性、耐熱性、耐圧性を有する材料で形成されていれば、特に制限はなく、前記材料としては、例えば、ステンレス鋼、アルミニウム、アルミニウム合金、マグネシウム、マグネシウム合金、ジルコニウムまたはジルコニウム合金等を挙げることができる。

## 【0057】

前記内筒9の内径は、前記ADU粒子形成槽8の内径に対して、 $1/3 \sim 1/2$ である

のが好ましい。

【0058】

前記内径が、前記ADU粒子形成槽8の内径に対して、 $1/3 \sim 1/2$ であることにより、内筒内を上昇するアンモニア水溶液の上昇速度を、下降するその下降速度よりも速くすることができるので、生成したADU粒子がADU粒子形成槽8の底部に堆積するのを防止することができる。

【0059】

前記ADU粒子形成槽8の底部には、第2アンモニアガス供給手段11が設置される。この第2アンモニアガス供給手段11は、ADU粒子形成槽8の中に貯留されているアンモニア水溶液にアンモニアガスを供給することによりアンモニア水溶液に上昇流と下降流とを形成させ、アンモニア水溶液に滴下された液滴をアンモニア水溶液中で前記上昇流及び下降流に伴って上昇及び下降の運動を繰り返すように、形成される。このような機能を実現するために、たとえば、図1に示されるように、ガス噴出部12、ガス供給管13、およびアンモニアガスを充填した容器（図示せず。）を備える。

【0060】

ガス噴出部12は、ADU粒子形成槽8内にアンモニアガスを泡状にして供給する部材であり、前記ADU粒子形成槽8の底部に配置されるのが好ましく、特に、前記ADU粒子形成槽8の水平断面の中心と同軸となるように、ガス噴出部12が、ADU粒子形成槽8の底部に、配置されるのが好ましい。このような配置であると、ガス噴出部12からADU粒子形成槽8の縦軸線方向にアンモニアガスが噴出するので、ADU粒子形成槽8内のアンモニア水溶液において、ADU粒子形成槽8の縦軸線方向に沿って上昇する液体流が形成され、上昇するアンモニア水溶液の液流が転じてADU粒子形成槽8の内壁面に沿って下降する下降流が形成され、下降し切ったアンモニア水溶液の液流がADU粒子形成槽8の底部で再びアンモニアガスの噴出により上昇流となるように、アンモニア水溶液の上下に回転する液体循環流が形成される。前記内筒9は、その内側では上昇流を形成し、その外側では下降流を形成するように、液流の方向を調整する。

【0061】

前記ガス噴出部12の形状としては、前記ADU粒子形成槽8内のアンモニア水溶液に、アンモニアガスを泡状にして供給し、アンモニア水溶液の循環流を確実に発生させることができ、しかも、アンモニアガスの供給を停止させたときに、生成した重ウラン酸アンモニウム粒子が、ガス供給管13内に落下するのを防止することができる限り、特に制限はなく、例えば、板状または円錐台等を挙げることができる。

【0062】

前記ガス噴出部12は、耐腐食性、特に、耐アルカリ性、耐熱性を有する材料で形成されていれば、特に制限はなく、前記材料としては、例えば、ガラス、ステンレス鋼、アルミニウム、アルミニウム合金、マグネシウム、マグネシウム合金、ジルコニウムまたはジルコニウム合金等を挙げることができる。

【0063】

前記ガス噴出部12としては、アンモニアガスを通すことができれば特に制限はなく、例えば、金網、ガラスフィルターまたはガラスウールを適用することができ、また、シャワーヘッドを転用してもよい。

【0064】

前記ガス噴出部12は、アンモニアガスの圧力で飛ばされないように、公知の接着剤、接着工法または溶接等により、確実に、ADU粒子形成槽8の内壁に固定される。

【0065】

前記ガス噴出部12におけるアンモニアガスが通気する開口部の形状としては、特に制限はなく、円形、楕円形または三角形、正方形、長方形、五角形および六角形等の多角形を挙げることができる。

【0066】

前記開口部の直径は、ADU粒子の断面直径の70%以下であるのが好ましい。

## 【0067】

前記開口部の直径が、ADU粒子の断面直径の70%以下であると、ADU粒子が前記ガス供給管13に落下することがないので、ロスを生じることがない。

## 【0068】

ガス噴出部12からアンモニア水溶液に導入されるアンモニアガスのガス流量は、ADU粒子形成槽8の容積によるが、アンモニア水溶液の流動循環状態を実現することができる限りにおいて、特に制限はない。

## 【0069】

また、アンモニアガス濃度もまた、ADU粒子形成槽8の容積によるが、アンモニア水溶液の濃度を10v/v%以上にすることができる限りにおいて、特に制限はない。

## 【0070】

前記ガス噴出部12から、アンモニア水溶液中にアンモニアガスを導入することにより、硝酸ウラニルとの反応で消費されたアンモニアを補うことができる。したがって、従来技術では、アンモニア水溶液の濃度が、10v/v%より少なくなると、アンモニア水溶液を交換する必要があったが、この発明に係るADU粒子製造装置を用いれば、ADU粒子の製造途中での交換作業が不要となり、装置の連続運転が可能になるので、生産効率を向上させることができる。

## 【0071】

(2) 滴下ノズル装置及びこれを備える重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置の作用  
初期状態として、ADU粒子形成槽8に、所定量のアンモニア水溶液が貯留される。第1アンモニアガス供給手段10により、ADU粒子形成槽8におけるアンモニア水溶液の液面上方に、アンモニアガス雰囲気形成されている。第2アンモニアガス供給手段11により、ADU粒子形成槽8内のアンモニア水溶液にアンモニアガスが吹き込まれることにより、アンモニア水溶液に上下の循環流が形成されている。

## 【0072】

滴下原液調製槽5からポンプPを介して滴下原液収容槽6に滴下原液を送液する。滴下原液収容槽6では所定量の滴下原液を収容する。滴下原液収容槽6に収容された滴下原液は、ノズル4に移送される。ノズル4の先端開口部から、滴下原液が滴々と落下する。

## 【0073】

このとき、ノズル4の先端開口部から滴下原液が流下することにより徐々に膨満する滴下球7が形成され、この滴下球7の重量が滴下球7をノズル4の先端開口部に付着する力に打ち勝つと、滴下球7が液滴として落下する。ノズル4の先端開口部で形成される滴下球7が成長して落下するまでの間、この滴下球には、滴下原液収容槽6に収容されている滴下原液による一定の静水圧が加わり、しかも滴下原液収容槽6とノズル4とによる圧力損失が少ないので、ノズル4の先端開口部から落下する滴下原液は一定の重量をもって落下することになる。

## 【0074】

液滴が落下することにより滴下原液収容槽6内の滴下原液における容積減少分は、滴下原液調製槽5からポンプPを介して補充される。また、滴下原液収容槽6内の滴下原液の容積が所定容積を超えるときには、その所定容積を超える分の滴下原液が図示しない排出口から排出される。したがって、ノズル4から滴下原液が液滴として排出されても、この滴下原液収容槽6には常に所定量の滴下原液が収容されることになり、これによってノズル4の先端開口部には一定の静水圧が加わることになる。

## 【0075】

ノズル4から落下した液滴は、ADU粒子調製槽8内を、アンモニア水溶液に向かって落下する。

## 【0076】

落下する液滴は、アンモニア水溶液の液面上に形成されているアンモニアガス雰囲気により、液滴の表面がゲル化される。前記ゲル化においては、滴下原液表面における硝酸ウラニルがアンモニアガスと反応して重ウラン酸アンモニウムを形成し、重ウラン酸アンモ

ニウムが被膜が形成される。その結果、落下する滴下原液がアンモニア水溶液の液面に衝突したときの衝撃による変形が、前記被膜により防止される。

【0077】

A D U 粒子形成槽 8 においては、前記ガス噴出部 1 2 が、前記内筒 9 の内側にアンモニアガスを供給することができるように前記 A D U 粒子形成槽 8 の底部に配置され、かつ前記ガス供給管 1 3 の開口部上部に、しかも前記開口部を覆うように配置されている。

【0078】

ガス噴出部 1 2 からアンモニア水溶液中にアンモニアガスが吹き込まれることにより、アンモニア水溶液の上下の循環流が形成される。これにより、前記 A D U 粒子形成槽 8 の底部に A D U 粒子を堆積させることなく効率的に A D U 粒子を流動状態にさせることができるようになり、A D U 粒子とアンモニア水溶液との接触時間を多くすることにより、アンモニア水溶液を A D U 粒子内部に浸透させ、その結果、アンモニアと A D U 粒子内部に存在する硝酸ウラニルとを完全に反応させることができる。したがって、高品質の A D U 粒子を得ることができ、さらに、堆積による A D U 粒子の変形を防止することができ、密度が均一な A D U 粒子を得ることができる。

【0079】

A D U 粒子形成槽 8 で形成された A D U 粒子は適宜の手段により、取り出される。

【実施例】

【0080】

(実施例)

図 1 及び図 2 に示される滴下ノズル装置 2 を用いた。ノズル 4 は、内径 0.5 mm、長さ 15 mm の円管形状を有していた。また、滴下原液収容槽 6 は、内径 6 mm、長さ 12 mm の円形の箱状部材であった。さらに、滴下原液は、酸化ウランを溶解した硝酸ウラニル溶液に、ポリビニルアルコール樹脂を添加し、混合して得た。この滴下原液の粘度は、約 60 c P であり、硝酸ウラニルの濃度は 0.7 モル/L であった。

【0081】

前記滴下原液収容槽 6 に収容されている滴下原液をノズル 4 の先端開口部から、A D U 粒子形成槽 8 内で循環するアンモニア水溶液中に滴下した。このアンモニア水溶液のアンモニア濃度は 25 体積% であった。滴下された滴下原液は、粒子状になってアンモニア水溶液とともに、A D U 粒子形成槽 8 内で循環した。

【0082】

A D U 粒子形成槽 8 内で滴下原液中の硝酸ウラニルとアンモニアとの反応が十分に進行して重ウラン酸アンモニウムが形成されることにより A D U 粒子が形成されると、A D U 粒子形成槽 8 から A D U 粒子を取り出す。

【0083】

この A D U 粒子から常法にしたがって二酸化ウラン燃料核を製造した。得られた二酸化ウラン燃料核は、平均直径が 600  $\mu$  m であった。そして、直径の標準偏差は、10  $\mu$  m 以下であり、真球であると判断された。

【図面の簡単な説明】

【0084】

【図 1】 図 1 は、この発明の一例である A D U 粒子製造装置を示す概略図である。

【図 2】 図 2 は、この発明の一例である滴下ノズル装置の一部を示す概略図である。

【図 3】 図 3 は、この発明の一例であり、先端部にエッジを有する滴下ノズル装置の一部を示す拡大図である。

【図 4】 図 4 は、この発明の他の例である滴下ノズル装置を示す概略図である。

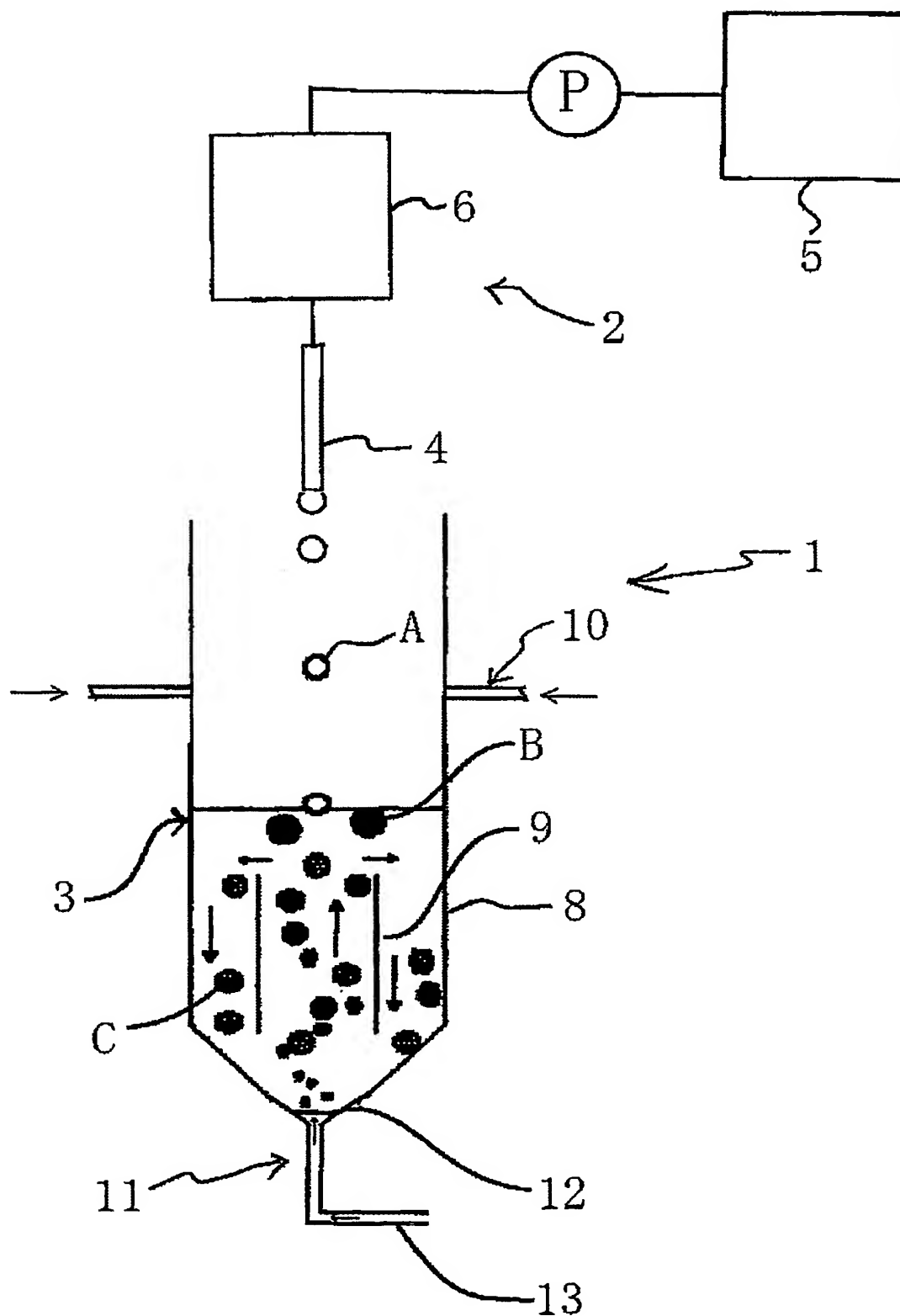
【符号の説明】

【0085】

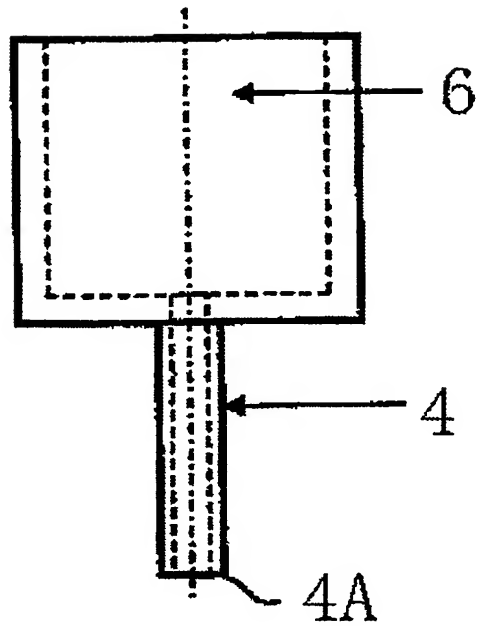
- 1 A D U 粒子製造装置
- 2 滴下ノズル装置
- 3 A D U 粒子形成装置

- 4 ノズル
- 4 A 開口部
- 4 B エッジ
- 5 滴下原液調製槽
- 6 滴下原液収容槽
- 7 滴下球
- 8 A D U 粒子形成槽
- 9 内筒
- 1 0 第 1 アンモニアガス供給手段
- 1 1 第 2 アンモニアガス供給手段
- 1 2 ガス噴出部
- 1 3 ガス供給管

【書類名】 図面  
【図 1】

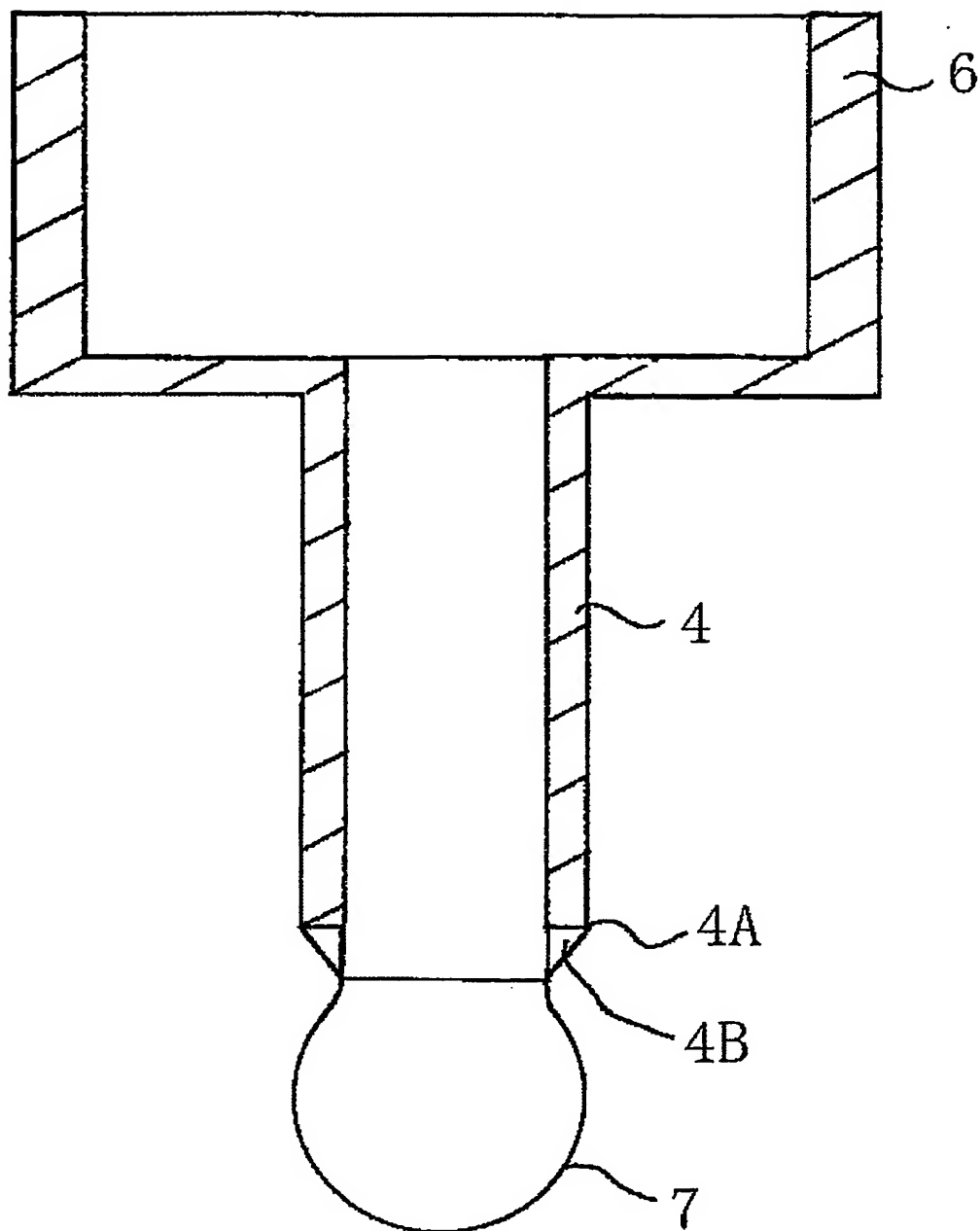


【図 2】

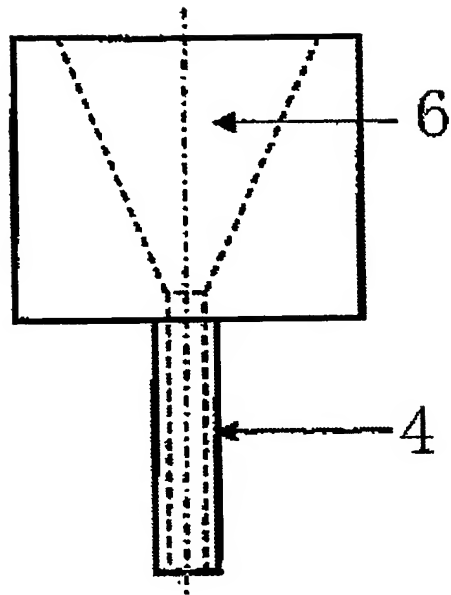




【図 3】



【図 4】



**【書類名】要約書****【要約】**

**【課題】** 直径分布が均一であり、真球性の良い二酸化ウラン燃料核を得ることができる滴下ノズル、および重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置を提供すること。

**【解決手段】** 硝酸ウラニルを含有する滴下原液を滴下するノズルと、前記滴下原液を貯留する滴下原液貯留槽から送液される滴下原液の一定量を収容可能に、前記ノズルの内容積よりも大きな内容積を有し、収容した滴下原液を重力に従って前記ノズルに供給する滴下原液収容部とを備えて成ることを特徴とする滴下ノズル装置及びこれを使用する重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置。

**【選択図】** 図 1

特願 2004-286349

出願人履歴情報

識別番号

[000165697]

1. 変更年月日

2001年 8月20日

[変更理由]

住所変更

住 所

東京都港区三田三丁目14番10号

氏 名

原子燃料工業株式会社

....

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record.**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINE(S) OR MARK(S) ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

## **IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**